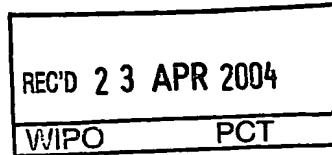


BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND



ED 04/3377

Prioritätsbescheinigung über die Einreichung einer Patentanmeldung

Aktenzeichen:

103 17 451.6

Anmeldetag:

16. April 2003

Anmelder/Inhaber:

Degussa AG, 40474 Düsseldorf/DE; Uhde GmbH,
44141 Dortmund/DE.

Erstanmelder:

Uhde GmbH, 44141 Dortmund/DE

Bezeichnung:

Reaktor für heterogen katalysierte Reaktionen

IPC:

B 01 J 19/00

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 1. März 2004
Deutsches Patent- und Markenamt
Der Präsident
Im Auftrag

**PRIORITY
DOCUMENT**

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

A 9161
02/00
EDV-L

[001] Reaktor für heterogen katalysierte Reaktionen

[002] Die Erfindung betrifft einen Mikroreaktor mit katalytischer Wandpräparation zur Durchführung heterogen katalysierter Gasphasenreaktionen im industriellen Maßstab. Der Reaktor ist analog einem Plattenwärmetauscher in Schichten aufgebaut, wobei die so entstehenden und durch Distanzelemente stabilisierten und segmentierten Räume Reaktionsräume und Wärmetransporträume darstellen. Der Schichtenaufbau ist derart dimensioniert, dass für den großtechnischen Einsatz für eine Produktion im Tonnenmaßstab optimale Verhältnisse bezüglich Strömung, Wärme- und Stofftransport, Reaktionskinetik, Verfahrenssicherheit und Statik vorliegen.

[003] Mikroreaktoren in Plattenbauweise sind in der industriellen Anwendung weit verbreitet und in unterschiedlichstem Einsatz. Der Aufbau dieser gestapelten Reaktoren ist im Wesentlichen ähnlich und umfasst eine oder mehrere zentrale Zuleitungen für Edukte bzw. Wärmetransportmedien, von welchen Teilströme abzweigen und in die jeweiligen Schicht zugeführt werden. Nach der Durchströmung einer Schicht und dem jeweiligen chemischen oder physikalischen Prozessschritt, werden die Einzelströme stoffweise in zentralen Ableitungen zusammengefasst und nachfolgenden Schichten zugeführt oder aus dem Reaktor geleitet.

[004] In US2002/0106311 und US5,534,328 sind Mikroplattenreaktoren der vorgenannten Art offenbart, in welchen eine Vielzahl von Schichten und Schichtabfolgen beschrieben werden, welche zum Teil unterschiedliche Funktionen erfüllen, wobei allerdings in Bezug auf eine optimierte Konstruktion oder Verfahrensführung für den großtechnischen Einsatz keine Lehre offenbart wird. Dies ist insbesondere in Bezug auf extremere Prozessbedingungen wie hohe Drücke, hohe Temperaturen und/oder stark exothermer Reaktionen oder explosiver Gaszusammensetzungen ein diesen Schriften innewohnender Mangel.

[005] In DE 39 26 466 ist ein Mikroreaktor zur Durchführung chemischer Zweistoffreaktionen beschrieben, dessen Einsatz für Reaktionen mit starker Wärmetönung benannt wird und welcher auch für heterogen katalytische Reaktionen geeignet ist. In den Schichten sind Längsrillen angeordnet, die von dem Reaktionspartner nach einer Zusammenführung von im Wesentlichen zwei Medien durchströmt werden, während wechselweise in einer nachfolgenden Schicht ein Kühlmedium strömt. Diese quer zu den Reaktionsrillen verlaufende Kühlung erfolgt gemäß DE 39 26 466 am Ende der Längsrillen über die Schichtwand oder auf der kompletten Schichtlänge. Zur Einstel-

lung der Wärmetransportvorgänge und erforderlicher Kompaktheit werden Wandstärken kleiner $1000\text{ }\mu\text{m}$ angegeben, was den Einsatz dieses Reaktors für aggressivere Reaktionen unter hohen Drücken verbietet. In der industriellen Anwendung sind weiterhin häufig Katalysatormaterialien im Einsatz, die nicht aus der Gruppe der genannten katalytisch wirkenden Metalle stammen und nicht als Basismaterial einsetzbar sind.

[006] In DE 196 54 361 wird ein Reaktor in Stapelbauweise beschrieben, welcher für chemisch-katalytische Prozesse eingesetzt wird, wobei der Katalysator als Schicht an den Innenwänden der Reaktionskanäle aufgebracht ist. Alternierend zu den die Reaktionskanäle enthaltenden Schichten sind Schichten angeordnet, in welchen analog den vorgenannten Schichten ein Wärmetransportmittel geführt wird, wobei gleichartige Schichten in fluidischer Verbindung stehen. In DE 196 54 361 wird eine sehr einfache Variante der Strömungsführung innerhalb des Reaktors offenbart, indem über einen quer liegenden Schlitz das von der vorherigen Schicht ankommende Reaktionsfluid auf die nachfolgende Reaktionsschicht bzw. den Ableitungskanal verteilt wird. Nachteilig ist, dass durch diese fast direkte Weiterleitung nur sehr geringe Homogenisierungsvorgänge zwischen den Teilströmen der einzelnen Kanäle ablaufen, so dass die Gefahr der Bildung stark und weniger stark durchströmter Kanäle gegeben ist, aus welchen erhöhte Konzentrationen von Edukten oder auch Nebenprodukten aus Folgereaktionen resultieren können. Angaben zur reaktionsspezifischen Dimensionierung der einzelnen Schichten oder Kanaldimensionen sind der Schrift nicht zu entnehmen.

[007] EP 1 031 375 offenbart einen Mikroreaktor zur Durchführung chemischer Reaktionen in horizontalen Räumen, welcher analog dem vorgenannten Reaktor funktioniert, wobei die Fluidweiterleitung zur nächsten Schicht oder Funktionsstufe über einen rotationssymmetrischen Kanal erfolgt. Entscheidend an dem in EP 1 031 375 offenbarten Mikroreaktor ist, dass die Dichtung zwischen den Platten ohne zusätzliche Dichtungsmaterialien mittels integrierten Abdichtzonen erfolgt, welche nur über die beidseitig hochwertige Oberflächenbeschaffenheit in diesem Bereich und entsprechenden Anpressdruck realisiert wird. Als Merkmal wird weiterhin genannt, dass je nach Bedarf diverse Prozesse und Synthesen zusammengestellt werden können, da die Funktionsmodule dieses Mikroreaktors leicht lösbar miteinander verbunden sind. In der industriellen Anwendung sind sehr hohe Anforderungen an die Oberflächenbeschaffenheit in Berührungs- und Revisionsbereichen sicherlich kritisch zu sehen, und für Reaktionen mit einer sehr ausgeprägten Wärmetönung oder Druckwechseln ist keine ausreichende Leckagesicherheit gegeben.

[008] In EP 0 903 174 wird ein Mikroreaktor für Flüssigphasenreaktionen organischer Verbindungen unter Einsatz von Peroxiden als Oxidationsmittel offenbart, welcher das Problem der sicheren Temperaturführung über eine alternierende und stapelweise Abfolge von Reaktions- und Kühlschichten löst, wobei die Mikrokanäle der benachbarten Schicht immer im rechten Winkel zueinander verlaufen und eine maximale Restwanddicke zwischen Reaktionskanal und angrenzender Kühlschicht von 1000 μm und ein maximaler hydraulischer Durchmesser der Reaktionskanäle von ebenfalls 1000 μm aufgezeigt wird. Die zentrale Herausforderung der in dieser Schrift genannten peroxidischen Reaktionen ist der Explosionsschutz. Damit sind Dichtheit des Systems sowie die Sicherstellung einer optimalen Durchmischung der eingesetzten Reaktanten fundamental, um Bereiche mit explosiven Peroxid-Konzentrationen zu vermeiden, allerdings ist hierzu EP 0 903 174 außer der Dimensionierung der Kanalquerschnitte keine Lehre zu entnehmen. Der Explosionsschutz wird in der genannten Schrift nur unter dem Gesichtspunkt der sicheren Einhaltung der erforderlichen Temperatur und Konzentrationen betrachtet.

[009] Aus DE 100 42 746 ist eine Vorrichtung und ein Verfahren bekannt, in welchem mindestens zwei fluide Medien miteinander reagieren, wobei gegebenenfalls weiterhin ein rieselfähiger oder wandanhaftender Katalysator vorliegt. Die Reaktion findet in dem beschriebenen Reaktor in flächig-spaltförmigen Reaktionsräumen statt. In den diese Reaktionsräume bildenden Platten sind Hohlräume oder Bohrungen vorgesehen, in welchen das Wärmetransportmedium hindurchgeführt wird. Grundidee dieses in DE 100 42 746 offenbarten Reaktors ist ein parallel und flächig durchströmter Reaktionsraum ohne weitere Einbauten, wobei einzelne Abstandhalter im Randbereich die Spaltweite zwischen zwei Platten sicherstellt. Dabei werden nur in einer Abmessung, nämlich in der Spaltweite, Mikrodimensionen im Bereich von 50 bis 5000 μm eingestellt. Ein weiteres zentrales Merkmal ist die inhärente Sicherheit dieses Reaktors, da der geringe freie Durchmesser eine Flammenausbreitung unterbindet. Dieser Reaktor ist von der Grundidee sehr vielversprechend, allerdings sind im industriellen Einsatz bei den genannten großen flächigen Spalten Teilverschlüsse der Reaktionsschlitzten zu erwarten. Derartige Teilverschlüsse sind Folge von hohen Druckdifferenzen zwischen Reaktionsraum und Wärmetransportraum oder thermisch bedingter Spannungen, beispielsweise bei prozessbedingten An- oder Abfahrvorgängen.

Bei einer Wandbeschichtung mit einem katalytisch wirkenden Material ist weiterhin zu erwarten, dass vorgenannte Materialbewegungen sowie prozessbedingte Schwingungen und Vibrationen zu Abplatzungen führen, welche wiederum einen Teilverschluss

zur Folge haben. Fertigungstechnisch sehr aufwändig sind die vielen Hohlräume in den Platten, welche weiterhin nur sehr schwer kontrolliert und gereinigt werden können. Die für viele Reaktionen erforderliche Möglichkeit zur gleich- oder gegengerichteten Durchströmung von Reaktionsschlitzten und Wärmetransporträumen besteht nicht.

- 5 **[010]** Gegenüber dem eingangs beschriebenen Stand der Technik liegt der Erfindung das technische Problem zugrunde, einen Mikroreaktor für den großtechnischen industriellen Einsatz anzugeben, mit welchem heterogen katalytische Reaktionen bei hohen Temperaturen und Drücken sowie bei explosiven Prozesszuständen durchführbar sind, mit welchem Stoffmengen produzierbar sind, die im Bereich von Tonnen pro Tag liegen
10 und eine Kapazitätserhöhung mittels einer einfachen Vervielfältigung der Reaktions- und Wärmetransporträume möglich ist.

- 15 Diese Aufgabe wird erfindungsgemäß aufgrund der Merkmale des Anspruchs 1 gelöst und durch die Merkmale der Unteransprüche ausgestaltet. Offenbart wird ein Mikroreaktor zur Durchführung heterogenkatalysierter Reaktionen, welcher eine Vielzahl von vertikal oder horizontal und im Wesentlichen parallel angeordneten Räumen aufweist. Diese Räume weisen mindestens je eine Zuleitung auf, welche mit mindestens einer Verteilereinheit verbunden ist und umfassen weiterhin Ableitungen, welche mit mindestens einer Sammeleinheit verbunden sind. Die Zuleitungen der Räume und Fluide gleichen Typs sind miteinander verbunden, wobei selbiges auch für die Ableitungen
20 der Räume gleichen Typs gilt. Die Räume werden durch gestapelte Platten oder Schichten gebildet, wobei ein Teil der Räume Reaktionsräume darstellt, in welchen die chemisch-katalytische Reaktion abläuft, und der andere Teil der Räume stellt Wärmetransporträume zur Durchleitung eines Kühl- oder Heizmediums dar, wobei der Wärmetransport zwischen Reaktions- und Wärmetransporträumen durch mindestens eine gemeinsame Raumwand oder direkt anliegende benachbarte Platten erfolgt. In allen Räumen sind Distanzelemente angeordnet, um die Kraftdurchleitung eines von außen anliegenden Anpressdruckes durch den Plattenstapel zu leiten und den Verschluss der Mikrokanäle durch Verformung der freien Tragweite zu unterbinden. Diese Verformung ist Folge eines Differenzdruckes zwischen Reaktions- und Wärmetransportraum. Erfindungsgemäß ist auf den Innenwänden der Reaktorräume mindestens teilweise Katalysatormaterial aufgebracht. Hierbei wurde überraschenderweise entdeckt, dass der freie Strömungsquerschnitt in den Mikrostrukturen dieser Konstruktion nach dem Aufbringen des Katalysators einen hydraulischen Durchmesser kleiner $4000\ \mu\text{m}$ und ein Verhältnis von Schlitzbreite zu Schlitzhöhe von kleiner 800 aufweisen muss.
30

[011] Abhängig vom gewählten Grundmaterial der Platten wird weiterhin von der Erfindung offenbart, dass eine besonders vorteilhafte Reaktorkonstruktion vorliegt, wenn der hydraulische Durchmesser des freien Strömungsquerschnitts unter $1500\ \mu\text{m}$ und idealerweise unter $500\ \mu\text{m}$ liegt, wobei ein Verhältnis zwischen der Abstandslänge benachbarter Distanzelemente zur Schlitzhöhe des Reaktionsraumes kleiner 800, vorrangig kleiner 450 und idealerweise unter 100 vorliegt. Dieses Längenverhältnis darf allerdings nicht kleiner als 10 sein. Der Abstand zweier Distanzelemente meint hierbei die lotrecht kleinste Distanz und ist damit im Falle paralleler Schlitze die Schlitzbreite. Unter Schlitzhöhe und Abstand der Distanzelemente sind die Größen nach einer Beschichtung zu verstehen, da nur diese den freien Strömungsquerschnitt bilden. Bei einer derartigen Plattenkonstruktion sind in den Reaktionsraum die Randeffekte durch die Distanzelemente minimiert und die Stofftransportvorgänge, welche im Wesentlichen den Übergang von Edukt aus der Kernströmung zur Katalysatoroberfläche und Rücktransport von dieser Oberfläche darstellt, optimal.

[012] Bei einer effektiven Plattenhöhe von kleiner $4000\ \mu\text{m}$ und einem metallischen Basismaterial der Platte, ist bezüglich des Wärmetransportes die Dicke der Katalysatorschicht die limitierende Größe für den Wärmetransport, womit ein quasi isothermer Betrieb des Mikroreaktors möglich ist.

[013] Die Katalysatorbeschichtung der Innenräume kann auch auf den Sammel- oder Verteilerraum ausgedehnt sein, wobei auch ein zu dem in den Reaktionsschlitzen unterschiedlicher Katalysator in diesen Bereichen an den Wandflächen angebracht sein kann.

[014] Die Formgebung der Distanzelemente ist in keiner Weise eingeschränkt und kann rotationssymmetrisch, tropfenförmig, rhombenförmig oder vorteilhafterweise als Stege und idealerweise als durchgehende Stege gestaltet sein. Entscheidend ist ein ausreichendes Tragverhältnis, welches sich als Funktion aus den Materialeigenschaften des Basismaterials, der Prozesstemperatur und dem Differenzdruck zwischen benachbarten Räumen und dem resultierenden und von außen aufzubringenden Anpressdruck ergibt.

[015] Der wesentliche Vorteil einer Gestaltung der Distanzelemente als durchgehende Stege ist der Einfluss auf das Strömungsverhalten in den auf diese Weise ausgebildeten rechteckigen Reaktionsschlitzen, die zusätzlich erzeugte Haftfläche für das Katalysatormaterial und fertigungstechnische Gesichtspunkte.

[016] Das Strömungsverhalten, Diffusionseffekte und Stofftransportvorgänge können in definierten Schlitzen sehr gut simuliert und optimiert werden. Gleichzeitig kann der Einfluss von Querströmungen und Rückvermischungen unterbunden werden. Die Seitenflächen der Stege dienen dem an den Wänden anhaftenden Katalysator als Kontakt- und Haftfläche und stabilisieren so das Katalysatorbett. Aus fertigungstechnischer Sicht sind Platten mit gleichmäßigen Schlitzen oder Stegen auf Standardmaschinen technisch einfach und sehr wirtschaftlich herstellbar. Zur Bereitstellung einer ausreichenden Tragfläche zeigte sich, dass der Anteil der Standard- beziehungsweise Grundfläche der Distanzelemente auf einer Plattenfläche, welche einen Reaktions- oder Wärmetransportraum bildet, bezogen auf die gesamte Plattenfläche idealerweise im Bereich von 5-15% liegt, wobei der Anteil über 2,5% liegen und 30% nicht überschreiten sollte. Bei einer hohen Druckdifferenz zwischen Prozessräumen und den Wärmetransporträumen ermöglichen die Kopfflächen der Distanzelemente somit ein hinreichendes Tragverhältnis zur Kraftdurchleitung einer über die beiden Endplatten oder endständigen Ankern oder Ankerplatten aufgetragenen Anpressdruck. Sind die Distanzelemente als Stege ausgeführt, so ist die kleinste Stegbreite 1000 μm , Eine Stegbreite über 6000 μm ist in der Regel wirtschaftlich und fertigungstechnisch nicht mehr interessant.

[017] Eine weitere vorteilhafte Ausgestaltung der erfindungsgemäßen Vorrichtung liegt vor, wenn das katalytische Material in eine Vertiefung eingebracht wird, welche durch Materialabtrag von der Platte gebildet worden ist. Diese Art der Katalysatorplatzierung auf der Platte ermöglicht einen sehr gleichmäßigen Auftrag, da mechanisch beispielsweise mittels eines Schabers oder Schleifmittels das überstehende Katalysatormaterial auf Höhe der Basisplatte abgetragen werden kann. Die Vertiefungen können eine beliebige Form aufweisen und sind vorteilhafterweise in Nuten- oder Rillenform gestaltet, wobei eine derartige Nut oder Rille idealerweise immer genau zwischen zwei Stegen in einem Reaktionsspalt verläuft.

[018] Weiterhin ist mit der Erfindung umfasst, das mindestens Teile des Platten- oder des Stegwerkstoffes katalytisch wirken. Dies ist vorrangig der Fall, wenn metallische Werkstoffe, wie beispielsweise Edelmetalle, Mangan, Molybdän, Eisen, Chrom, Nickel und andere eingesetzt werden. Abhängig vom energetischen Verlauf der jeweils ablaufenden katalytischen Reaktion, können die Hauptströmungsrichtungen der benachbarten Reaktions- und Wärmetransporträume dergestalt angeordnet sind, dass die Durchströmung bezogen auf den nächstliegenden Raum im Gleich-, Gegenstrom oder mäanderförmig erfolgt. Es ist vor allem möglich, quasi isotherme Reaktionsbedingun-

gen herzustellen, da parallel zu jedem Reaktionsraum in direkter Wirkverbindung auch der Wärmetransport erfolgt. Liegt ein metallisches Basismaterial vor, und sind entsprechend den oben genannten Angaben die Schlitz- und Plattengeometrien optimiert, wird der Wärmetransport vor allem von der Schichtdicke des Katalysatormaterials limitiert.

- 5 [019] In einer weiteren Ausführungsform sind die Stege je zweier Platten zueinander gerichtet und diese Stege bilden zueinander einen Winkel von 0° bis 90° . In einer besonders vorteilhaften Ausgestaltung sind diese Stege parallel und direkt übereinander liegend angeordnet. Bei einer nicht parallelen Anordnung der Stege wird ein starker Misch- und Verwirbelungseffekt erzielt.
- 10 [020] In einer weiteren vorteilhaften Ausgestaltung der Erfindung ist vorgesehen, dass im Eingang und innerhalb der Reaktionsräume mindestens ein Bereich vorgesehen ist, in welchem mindestens zwei Fluide gemischt werden, wobei mindestens ein gasförmiges oder flüssiges Fluid eingedüst wird an welche sich eine Homogenisierungsstrecke anschließen kann. Erfindungsgemäß ist weiterhin umfasst,
- 15 dass vor oder entlang dieser Homogenisierungsstrecke eine Vorrichtung beliebiger Bauform angeordnet ist, welche die zur Hauptströmungsrichtung senkrecht stehende freie Querschnittfläche verringert. Diese Verringerung der Querschnittsfläche erzeugt eine Erhöhung der Strömungsgeschwindigkeiten und somit eine starke Vermischung der Fluide. Die Bereiche mit vermindertem freien Strömungsquerschnitt stellen bei ent-
- 20 sprechender Konstruktion eine mechanische Flamm Sperre dar. Diese Flamm Sperre oder Quench-Effekt verhindert somit den Übertritt von Zündvorgängen aus der Reaktionszone, welche vorrangig im Bereich der Reaktionsschlitz mit Katalysatorbeschichtung lokalisiert ist, hin zu anderen Prozesseinheiten, als auch den Flammeintritt in die Reaktionszone, ausgehend von der Verteiler- oder Sammeleinheit.
- 25 [021] In einer weiteren erfindungsgemäßen Vorrichtung sind Bohrungen in der Raumwand angeordnet, welche bezogen auf die Hauptströmungsrichtung im Winkel von -60° bis $+60^\circ$ und vorzugsweise im Winkel von -30° bis $+30^\circ$ geneigt und über mindesten einen im Wesentlichen quer zu der Hauptströmungsrichtung liegenden gemeinsamen Kanal verbunden sind. Über diesen Hauptkanal und die Bohrungen erfolgt
- 30 die Eindüsung eines Fluids in den Reaktionsraum beziehungsweise in die jeweiligen Reaktionsschlitz.

[022] Von der Erfindung ist weiterhin umfasst, dass in Strömungsrichtung am Ende der Reaktionsräume mindestens eine Vorrichtung vorgesehen ist, die die zur Haupt-

strömungsrichtung senkrecht stehende freie Querschnittfläche verringert, wobei die Vorrichtung eine beliebige Form aufweist und vorteilhafterweise als eine Vielzahl der Distanzelemente, als Erweiterungen der Stegbreiten oder als Blenden und idealerweise als Verringerung der Spalthöhe ausgeführt ist. Diese Querschnittsverringering am Ende der Reaktionsräume dient der Vergleichmäßigung der Strömung und stellt analog der vorgenannten Gestaltung des Eingangsbereichs bei geeigneter Mikrostrukturierung eine mechanische Flamm Sperre dar und verhindert somit eine vom Katalysator ausgehende Zündung in die angrenzenden und in der Regel makrostrukturierten Reaktor- oder Prozesseinheiten hinein. Überraschenderweise stellte sich heraus, dass unter dem Erfordernis eines weitergehenden Explosionsschutzes im Bereich der Stauzone kein Katalysatormaterial mehr angeordnet sein darf, da eine vom Katalysator ausgehende Zündung sonst auch bei bestehender mechanischer Flammhemmung in die Sammeleinheit durch schlagen kann.

Die Vergleichmäßigung der Strömung ist sehr vorteilhaft, da beispielsweise Unebenheiten in der Katalysatorschicht unterschiedliche Druckdifferenzen entweder in Bereichen der Reaktionsräume oder einzelnen Schlitzten erzeugen, so dass es zu einer ungleichmäßig Durchströmung kommen würden, was zu entsprechenden Nachteilen in der Produktqualität führt. Es zeigte sich, dass der Druckverlust durch die Querschnittsverengung am Auslauf der Platten mindestens um den Faktor 5 größer sein muss als die Schwankung der Druckdifferenz, welche sich aus den Fertigungstoleranzen der Katalysatorschicht ergeben. Idealerweise sollte der Druckverlust über die Stauzone um den Faktor 10 höher sein, als der vorgenannte schwankungsbedingte Druckverlust.

[023] Erfindungsgemäß werden weiterhin Verfahren zum Einsatz des vorgenannten Reaktors offenbart, welche bei Differenzdrücken im Bereich von 0 bar bis 15 bar durchgeführt werden, wobei der ideale Einsatzbereich abhängig von dem gewählten Basismaterial zwischen 0 bar und 5 bar liegt. Die möglichen Prozesstemperaturen reichen von Tieftemperaturen unter 0 °C bis Temperaturen von circa 500 °C. Zum Wärmetransport in den in den Wärmetransporträumen können flüssige oder gasförmige Medien hindurchgeleitet werden.

[024] Eine besondere Ausgestaltung der Erfindung sieht vor, das die Medien in den Wärmetransporträumen während der Durchleitung durch Kondensation oder Verdampfung vollständig oder teilweise den Aggregatzustand ändern.

[025] Damit sind von der Erfindung Verfahren umfasst, wie

beispielsweise die Synthese von Propylenoxyd aus im Wesentlichen Propen und Wasserstoffperoxid oder Phenol aus im Wesentlichen aromatischen Kohlenwasserstoffen sowie weitere Synthese von Kohlenwasserstoffverbindungen und besonders von Oxygenaten von Kohlenwasserstoffverbindungen. Weiterhin ist der Reaktor geeignet für
 5 die Synthese von Wasserstoffperoxid aus Wasserstoff und Sauerstoff.

[026] Die Erfindung wird nachstehend anhand von Ausführungsbeispiele darstellenden Zeichnungen erläutert. Es zeigen

Fig. 1 eine einzelne Reaktorplatte in der Draufsicht und die Lage der Detailansicht Fig. 5 im Eingangsbereich der Platte sowie die Lage der Detailansicht Fig. 7 am Ausgang der Platte sowie die Dichtungs- und Leitstegeanordnung;

Fig. 2 analog der Fig. 1 eine einzelne Reaktorplatte in der Draufsicht, welche keine integrierte Verteilereinheit aufweist, sondern auf der schmalen Platten-
 10 seite auf der gesamten Breite angeströmt wird; ;

Fig. 3 eine einzelne Wärmetransportplatte in der Draufsicht sowie eine Variante der Dichtungsanordnung und der Leitstege;

Fig. 4 als Schnittzeichnung beispielhaft eine Stapelfolge von Reaktor- und Wärmetransporträumen;

Fig. 5 in einer Detailansicht den Eingangsbereich der Schlitze sowie die Vorrichtung zur Eindüsung von Fluiden und die Homogenisierungsstrecke in zwei
 15 Ausführungsvarianten;

Fig. 6 die Lage der verwendeten Abmessungen

Fig. 7 in einer Detailansicht das Ende der Reaktionsschlitze beziehungsweise die Gestaltung der Distanzelemente sowie die Lage und Gestaltung der Stau-
 20 vorrichtung in zwei Ausführungsvarianten;

Fig. 8 mögliche Anordnungen in einem Reaktionsraum.

[027] Fig. 1 ist eine einen Reaktionsraum bildende Reaktorplatte zu entnehmen, auf welcher ein ankommendes Edukt über die zentrale Zuleitung 2 in die Verteilereinheit 6 des Reaktionsraumes 8 führbar ist. In der Verteilereinheit sind Leitstege 9 angeordnet, welche dieses Edukt gleichmäßig auf die mit Katalysatormaterial beschichteten Schlitze verteilt, welche sich zwischen den Distanzelementen 11, hier als Stege gezeigt, ausbilden. Die Schlitze sind parallel angeordnet und geben die Hauptströmungsrichtung 14 vor. Am Ende der Schlitze in der Sammeleinheit 7 gezeigt, in welcher ein Produktstrom gefasst wird und dort mittels weiterer Leitstege 9 der zentralen Ableitung 4
 30

zugeleitet wird. In Fig. 1 ist weiterhin die zentrale Zuleitung 24 für einen zweiten Eduktstrom gezeigt, welche quer zur Hauptströmungsrichtung 14 in der Basisplatte 1 liegende Kanäle 24a speist, welchen mit den in Fig. 5 gezeigten Bohrungen 25 verbunden sind. Über diese Bohrungen erfolgt die Eindüsung dieses zweiten Eduktstromes in den Reaktionsraum. Über irreversible Verbindungen und/oder Dichtungen 26 sind Reaktionsräume 8, Wärmetransporträume 10 sowie deren Zu- und Abläufe abgedichtet. In ähnlicher Weise ist die in Fig. 3 gezeigte Platte eines Wärmetransportraumes aufgebaut, wobei die Stege 11 in der gezeigten Ausführungsform mit den Stegen des Reaktionsraumes parallel und deckungsgleich verlaufen. Die Katalysatorbeschichtung und die Zuführungsleitung für weitere Fluide ist hierbei nicht vorgesehen.

[028] In Fig. 2 ist eine Reaktorplatte gezeigt, welche keinen integrierten Verteilerraum im Reaktionsraum aufweist, sondern durch einen zentralen Eduktstrom gemeinsam mit den anderen hier nicht dargestellten Reaktorplatten angeströmt wird.

[029] Fig. 4 zeigt als Schnittzeichnung beispielhaft eine Stapelfolge von Reaktor- und Wärmetransporträumen, wobei die Hauptströmungsrichtung senkrecht aus der Zeichenebene heraus oder in diese hinein führt. In dem Reaktionsraum a) sind einseitig mit Katalysatormaterial 12 beschichtete Schlitzze zu erkennen, wobei der nachfolgende Wärmetransportraum gleichartig gestaltet ist. Der maximal mögliche Strömungsquerschnitt der Reaktionsschlitzze ist gegenüber den Schlitzzen des angrenzenden Wärmetransportraumes um die Querschnittsfläche der Katalysatorschicht vermindert. Im Reaktionsraum b) sind Schlitzze zu erkennen, welche an beiden Plattenoberflächen mit Katalysator versehen sind. Es folgen Wärmetransporträume, welche eine unterschiedliche Anzahl an Schlitzzen enthalten. Auch in dem Reaktionsraum c) sind beide Plattenwände mit Katalysator beschichtet, wobei eine Plattenoberfläche mit Nuten versehen ist, in welchen das Katalysatormaterial 12 (s. auch Fig. 6 c)) eingebracht ist. Daher vermindert sich der maximal mögliche Strömungsquerschnitt nur um die Querschnittsfläche einer Katalysatorschicht.

Fig. 5 zeigt in drei Varianten den Einstromungsbereich einzelner Reaktionsschlitzze, wobei der Eduktstrom von der Verteilereinheit kommend in die Mischzone 30 einströmt, wo über den Zulauf 24a und die Bohrungen 25 ein zweites und drittes Fluid dem Eduktstrom zugemischt wird. Die Bohrungen 25 stehen wie in a) gezeigt rechtwinklig oder sind im Winkel γ (Fig. 5 b)) mit oder gegen die Hauptströmungsrichtung geneigt. Vor dem Eintritt in die Reaktionszone, welche sich durch die Wandbeschich-

net, in welcher durch Einbauten 29 eine Erhöhung der Strömungsgeschwindigkeit turbulente Verhältnisse geschaffen und optimale Vermischungen erreicht werden. In Fig. 5 b) sind zwei Ausführungsvarianten möglicher Einbauten gezeigt. Die Einbauten 29 b) verringern bereits in Bereich der Mischzone 30 den freien Strömungsquerschnitt, so dass Mikrostrukturen entstehen und bilden damit eine weitergehende mechanische Flamm Sperre als dies mit den Einbauten 29 a) gegeben ist.

[030] Fig. 6 zeigt die Lage der verwendeten Abmessungen und die in dieser Schrift verwendeten Längenangaben. Es ist zu erkennen, dass der freie Strömungsquerschnitt eines Schlitzes sich aus der Spaltbreite 16 mal Steghöhe 17 minus der Querschnittfläche des aufgetragenen Katalysatormaterials 12 ergibt, wobei die Katalysatorquerschnittsfläche üblicherweise das Produkt aus Schichtdicke und Spaltbreite 16 darstellt. Ausnahmen stellen beispielsweise die in Fig. 6 c) gezeigten Varianten dar, in welchen die Stegflanken ebenfalls mit Katalysatormaterial beschichtet sind oder das Katalysatormaterial in einer Nut oder Rille eingebracht ist (s. Fig. 6 c)). Die für die Festigkeitsüberlegungen maßgebliche Größe ist die effektive Plattenhöhe 22, welche im Bereich der geringsten Plattendicke vorliegt und im Beispiel c) im Bereich der Nut liegt. In den Beispielen a) und b) der Fig. 6 ist es die Plattenhöhe 21.

[031] Fig. 7 zeigt in einer Detailansicht die Auslaufzone der Reaktionsschlitzte in drei Gestaltungsvarianten sowie Ausführungsformen der Distanzelemente. Es sind in dem Ausführungsbeispiel a) in Fig. 7 Vergrößerungen der Stegbreiten 18 gezeigt, welche Stauzonen 32 darstellen. In dem Ausführungsbeispiel b) dieser Figur werden die Schlitzte durch eine Art Säulengang gebildet, indem rotationssymmetrische Distanzelemente gassenweise angeordnet sind und in den Gassen Katalysatormaterial, dargestellt als punktierte Fläche, aufgetragen ist. In dieser Variante wird der Stau effekt über ovale Distanzelemente bzw. Blenden 29 erreicht, welche in der Hauptströmung der Schlitzte angeordnet sind. Wie in der Teilansicht c) zu erkennen, sind die Distanzelemente in beliebiger Verteilung im Raum angeordnet, wobei die Stauzone 32 durch eine enger stehende Anordnung von Distanzelementen gebildet wird. Das Katalysatormaterial ist in diesem Beispiel auf der kompletten Plattenoberfläche aufgebracht und erstreckt sich auch auf den Bereich hinter der Staustufe.

[032] Zwei Ausführungsvarianten der Steganordnung innerhalb eines Reaktionsraumes zeigt Fig. 8. In beiden Beispielen sind die Stege der Platten zueinander gerichtet, wobei in a) die Stege zueinander rechtwinklig angeordnet sind. In der Ausführungsvariante b) liegt ein beliebiger Winkel α zwischen den Stegen vor. In beiden Fällen wird

auf der Strecke zwischen Verteilereinheit 6 und Sammeleinheit 7 eine hohe Quervermischung erzielt.

[033] BEZUGSZEICHENLISTE

- 1 Platte, Basisplatte
- 2 Zuleitung FLuid 1
- 3 Zulauf Wärmetransportmedium
- 5 4 Ableitung Produktstrom
- 5 Ablauf Wärmetransportmedium
- 6 Verteilereinheit
- 7 Sammeleinheit
- 8 Reaktionsraum
- 10 9 Leitstege
- 10 Wärmetransportraum / Wärmetransportmedium
- 11 Distanzelement
- 12 Katalysatormaterial
- 13 Freier Strömungsquerschnitt
- 15 14 Hauptströmungsrichtung
- 15 Schlitzhöhe
- 16 Schlitzbreite
- 17 Steghöhe
- 18 Stegbreite
- 20 19 Stegabstand
- 20 Katalysatorhöhe
- 21 Plattenhöhe
- 22 Effektive Plattenhöhe
- 23 Rillen-/Nutbreite
- 24 Zulauf Fluid 2 / Fluid 3
- 25 Bohrungen
- 26 Dichtung
- 27 Distanzelement Zylinder
- 28 Leitstege
- 30 29 Blende, Einbauten
- 30 Mischzone
- 31 Homogenisierzone
- 32 Stauzone

Patentansprüche

- 1 Mikroreaktor zur Durchführung heterogenkatalysierter Reaktionen, welcher eine
 5 Vielzahl von vertikal oder horizontal und im Wesentlichen parallel angeordneter
 Räume aufweist, welche mindestens je eine Zuleitung und eine Ableitung aufwei-
 sen, wobei die Zuleitungen mit mindestens einer Verteilereinheit und die Ableitun-
 gen mit mindestens einer Sammeleinheit verbunden sind, wobei die Räume durch
 10 gestapelte Platten oder Schichten gebildet werden, und ein Teil der Räume Reak-
 tionsräume darstellt, und der andere Teil der Räume Wärmetransporträume dar-
 stellt, wobei der Wärmetransport zwischen Reaktions- und Wärmetransporträumen
 durch mindestens eine gemeinsame Raumwand erfolgt, welche durch eine ge-
 meinsame Platte gebildet wird, wobei in allen Räumen Distanzelemente angeord-
 net sind, **dadurch gekennzeichnet, dass** an den Innenwänden der Reaktorräume
 15 mindestens teilweise Katalysatormaterial aufgebracht ist, wobei der hydraulische
 Durchmesser, welcher definiert ist als der Quotient aus der vierfachen Fläche zur
 Umfangslänge des freien Strömungsquerschnitts, in den Reaktionsräumen kleiner
 als $4000\ \mu\text{m}$ ist und vorteilhafterweise unter $1500\ \mu\text{m}$ und idealerweise unter
 $500\ \mu\text{m}$ liegt, und ein Verhältnis zwischen dem lotrecht kleinsten Abstand zweier
 20 benachbarter Distanzelemente zur Schlitzhöhe des Reaktionsraumes nach einer
 Beschichtung mit Katalysator von kleiner 800, vorrangig kleiner 450 und idealer-
 weise unter 100 vorliegt, und größer oder gleich 10 ist.
- 2 Vorrichtung nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Distanzele-
 mente rotationssymmetrisch, tropfenförmig, rhombenförmig oder vorteilhafterweise
 als Stege und idealerweise als durchgehende Stege gestaltet sind.
- 3 Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 oder 2, **dadurch gekennzeichnet, dass**
 25 der Anteil der Stand- beziehungsweise Grundfläche der Distanzelemente auf einer
 Plattenfläche, welche einen Reaktions- oder Wärmetransportraum bildet, bezogen
 auf die gesamte Plattenfläche mindestens 2,5% beträgt, vorzugsweise im Bereich
 von 5-15% liegt und 30% nicht überschreitet.
- 30 4 Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 3, **dadurch gekennzeichnet, dass**
 Distanzelemente, welche als Stege oder durchgehende Stege ausgebildet sind ei-
 ne Stegbreite größer oder gleich $1000\ \mu\text{m}$ aufweisen und nicht breiter als $6000\ \mu\text{m}$
 sind.

- 5 5 5 10 15 20 30 35
- 5 6 7 8 9 10 11 12 13
- Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 4, **dadurch gekennzeichnet, dass** das katalytische Material in einem Schlitz im Wesentlichen auf der Platte aufgebracht ist.
- Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 5, **dadurch gekennzeichnet, dass** mindestens Teilflächen der Verteiler- und/oder Sammeleinheit mit katalytischem Material beschichtet sind oder aus katalytisch wirkendem Material gefertigt sind.
- Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 6, **dadurch gekennzeichnet, dass** das Material mindestens einer Teilfläche der Raumwand oder der Distanzelemente katalytisch wirkt.
- Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 7, **dadurch gekennzeichnet, dass** Zu- und Ableitungen der Reaktions- und Wärmetransporträume dergestalt angeordnet sind, dass die Durchströmung bezogen auf den nächstliegenden Raum im Gleich-, Gegenstrom oder mäanderförmig erfolgt.
- Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 8, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Platten Vertiefungen in den Reaktionsräumen aufweisen, in denen zumindest teilweise das Katalysatormaterial eingebracht ist, wobei die Vertiefungen eine beliebige Form aufweisen können und vorteilhafterweise in Rillenform gestaltet sind und idealerweise immer genau in einem Spalt verlaufen.
- Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 9, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Stege je zweier Platten zueinander gerichtet sind und diese Stege zueinander den Winkel von 0° bis 90° bilden und idealerweise diese Stege parallel und direkt übereinander liegend angeordnet sind.
- Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 10, **dadurch gekennzeichnet, dass** in Hauptströmungsrichtung am Eingang und innerhalb der Reaktionsräume mindestens eine Vorrichtung vorgesehen ist, die die zur Hauptströmungsrichtung senkrecht stehende freie Querschnittfläche verringert, wobei die Vorrichtung eine beliebige Form aufweist.
- Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 11, **dadurch gekennzeichnet, dass** am Eingang und innerhalb der Reaktionsräume mindestens ein Bereich vorgesehen ist, in welchem mindestens zwei Fluide gemischt werden, wobei mindestens ein Fluid im Wesentlichen senkrecht zur Hauptströmungsrichtung eingedüst wird und nach der Eindüsung eine Homogenisierungsstrecke angeordnet ist.
- Vorrichtung nach Anspruch 12, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Eindüsung eines Fluids über Bohrungen in der Raumwand geschieht, welche bezogen auf die Hauptströmungsrichtung im Winkel von -60° bis $+60^\circ$ und idealerweise im Winkel

von -30° bis $+30^{\circ}$ geneigt und durch mindestens einen im Wesentlichen quer zu der Hauptströmungsrichtung liegenden Fluidkanal verbunden sind.

- 14 Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 13, **dadurch gekennzeichnet, dass** in Strömungsrichtung am Ende der Reaktionsräume mindestens eine Vorrichtung vorgesehen ist, die die zur Hauptströmungsrichtung senkrecht stehende freie Querschnittfläche verringert, wobei die Vorrichtung eine beliebige Form aufweist und vorteilhafterweise als eine Vielzahl der Distanzelemente, als Erweiterungen der Stegbreiten oder als Blenden und idealerweise als Verringerung der Spalthöhe ausgeführt ist.
- 15 Vorrichtung nach Anspruch 14, **dadurch gekennzeichnet, dass** der Druckverlust durch die Querschnittsverengung am Auslauf der Platten mindestens um den Faktor 5 größer ist, als die Schwankung der Druckdifferenz, welche sich aus den Fertigungstoleranzen der Katalysatorschicht und/oder des Spaltes ergeben.
- 16 Verfahren zum Einsatz der Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 15, **dadurch gekennzeichnet, dass** das Verfahren bei Differenzdrücken zwischen den Reaktions- und Wärmetransporträumen im Bereich von 0 bar bis 15 bar und idealerweise zwischen 0 bar und 5 bar liegen.
- 17 Verfahren zum Einsatz der Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 16, **dadurch gekennzeichnet, dass** in den Wärmetransporträumen flüssige oder gasförmige Medien hindurchgeleitet werden.
- 18 Verfahren zum Einsatz der Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 17, **dadurch gekennzeichnet, dass** in die Medien in den Wärmetransporträumen während der Durchleitung vollständig oder teilweise den Aggregatzustand ändern.
- 19 Verfahren zum Einsatz der Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 18, **dadurch gekennzeichnet, dass** das Verfahren bei Temperaturen unter $500^{\circ}\text{Celsius}$ und auch bei Temperaturen unter 0°Celsius eingesetzt wird.
- 20 Verfahren nach einem der Ansprüche 16 bis 19, **dadurch gekennzeichnet, dass** dieses zur Synthese von Kohlenwasserstoffverbindungen und besonders von Oxygenaten von Kohlenwasserstoffverbindungen eingesetzt wird.
- 21 Verfahren nach einem der Ansprüche 16 bis 19, **dadurch gekennzeichnet, dass** dieses zur Synthese von Propylenoxid aus im Wesentlichen Wasserstoffperoxid und Propen eingesetzt wird.
- 22 Verfahren nach einem der Ansprüche 16 bis 19, **dadurch gekennzeichnet, dass** dieses zur Synthese von Phenol eingesetzt wird.

- 23 Verfahren nach einem der Ansprüche 16 bis 19, dadurch gekennzeichnet, dass dieses zur Synthese von Wasserstoffperoxid aus im Wesentlichen Wasserstoff und Sauerstoff eingesetzt wird.

ZUSAMMENFASSUNG

Die vorliegende Erfindung offenbart einen Mikroreaktor zur Durchführung heterogenkatalysierter Reaktionen in Platten- bzw. Stapelbauweise für den großtechnischen Einsatz, wobei Plattenzwischenräume für die chemische Reaktion und für den Wärmeabtransport vorgesehen sind. In den Reaktionsräumen ist Katalysatormaterial an den Innenwänden aufgebracht oder in Vertiefungen eingefüllt und in allen Räumen sind Distanzelemente angeordnet. Insbesondere weisen die schlitzförmigen Reaktionsräume des Mikroreaktors Kanäle mit einem hydraulischen Durchmesser von unter 1500 μm und einem Verhältnis von freier Schlitzbreite zur freien Schlitzhöhe im Bereich von 10 bis 450 auf.

Fig. 1

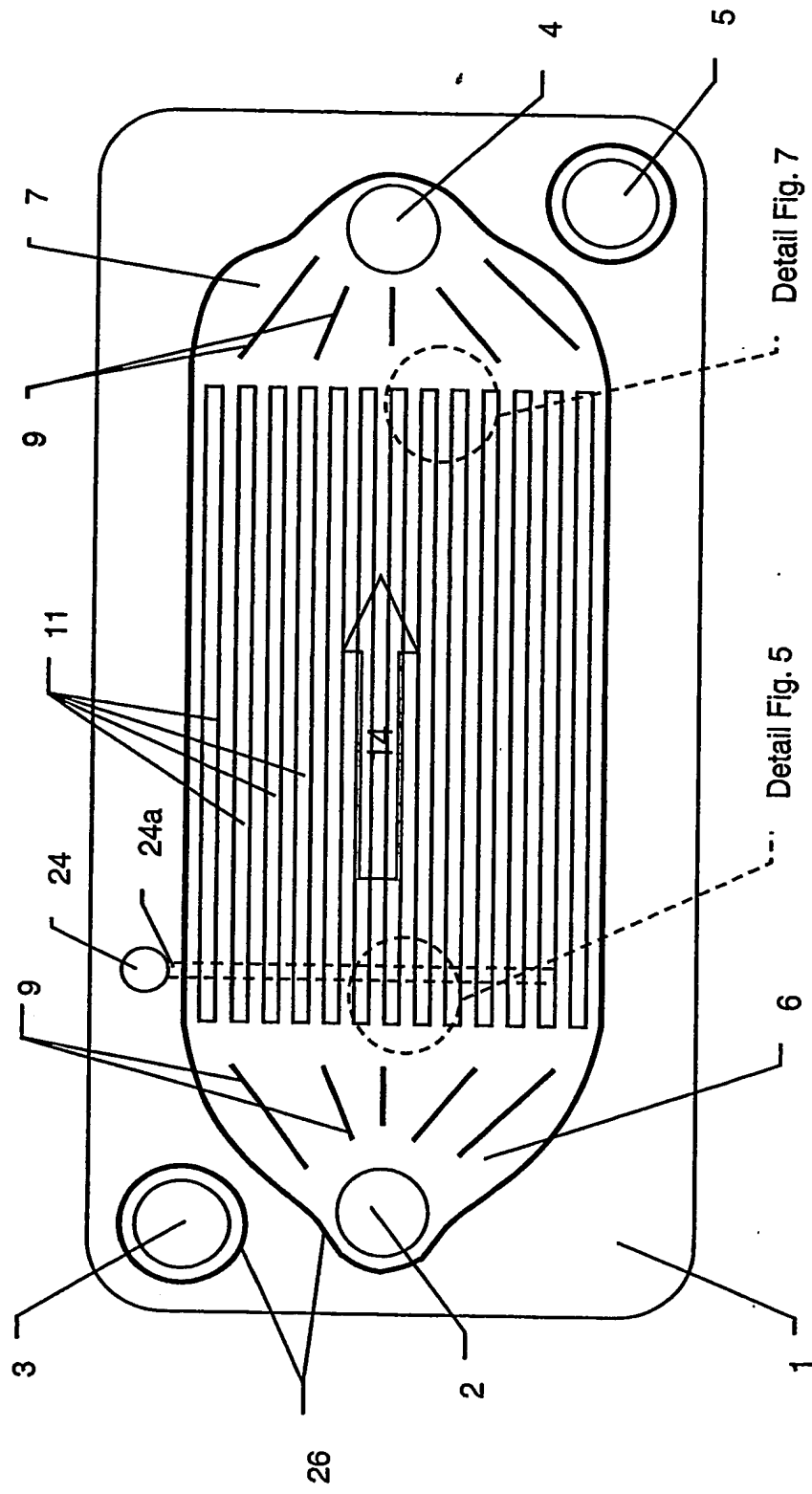


Fig. 2

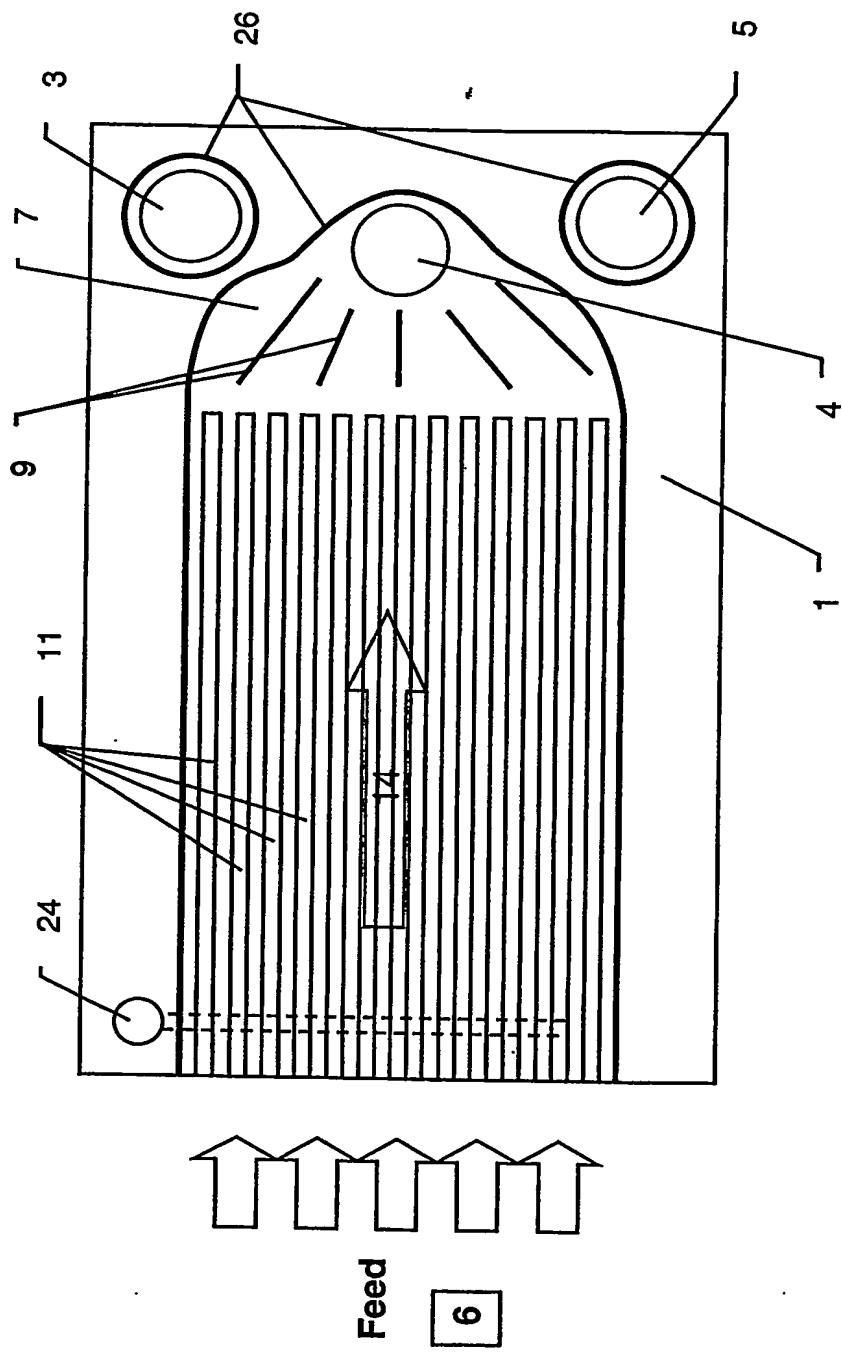


Fig. 4

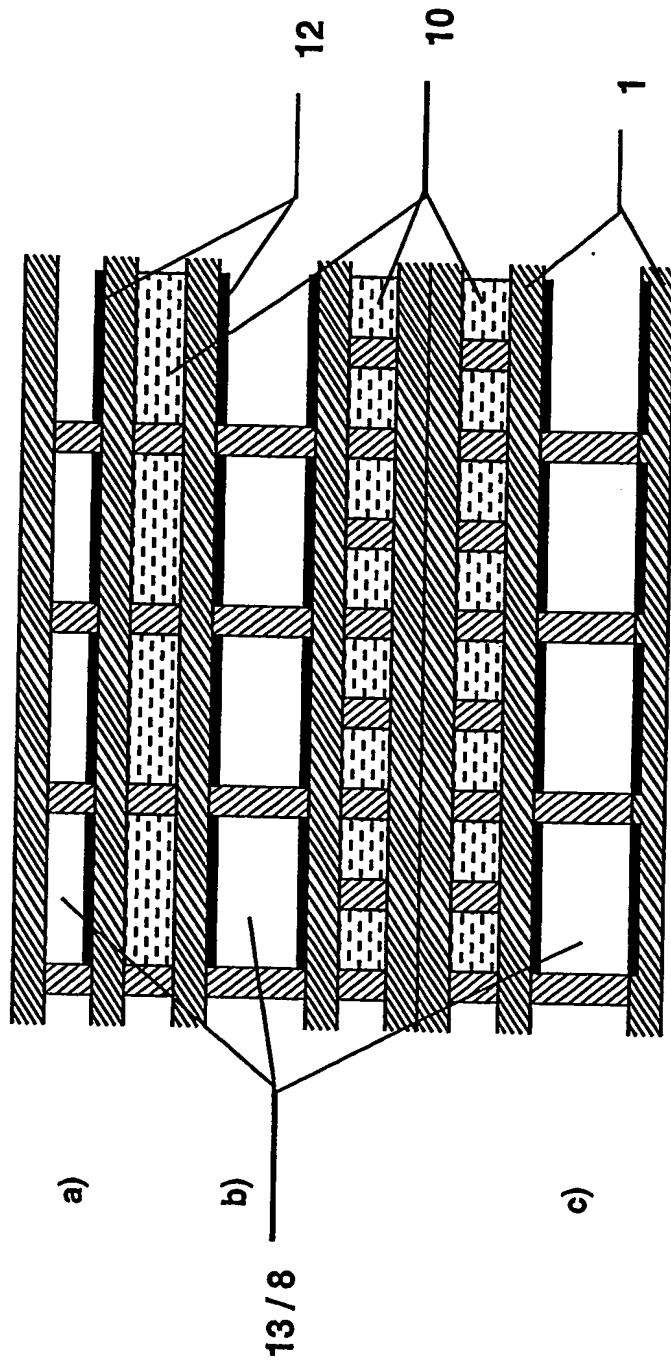


Fig. 5

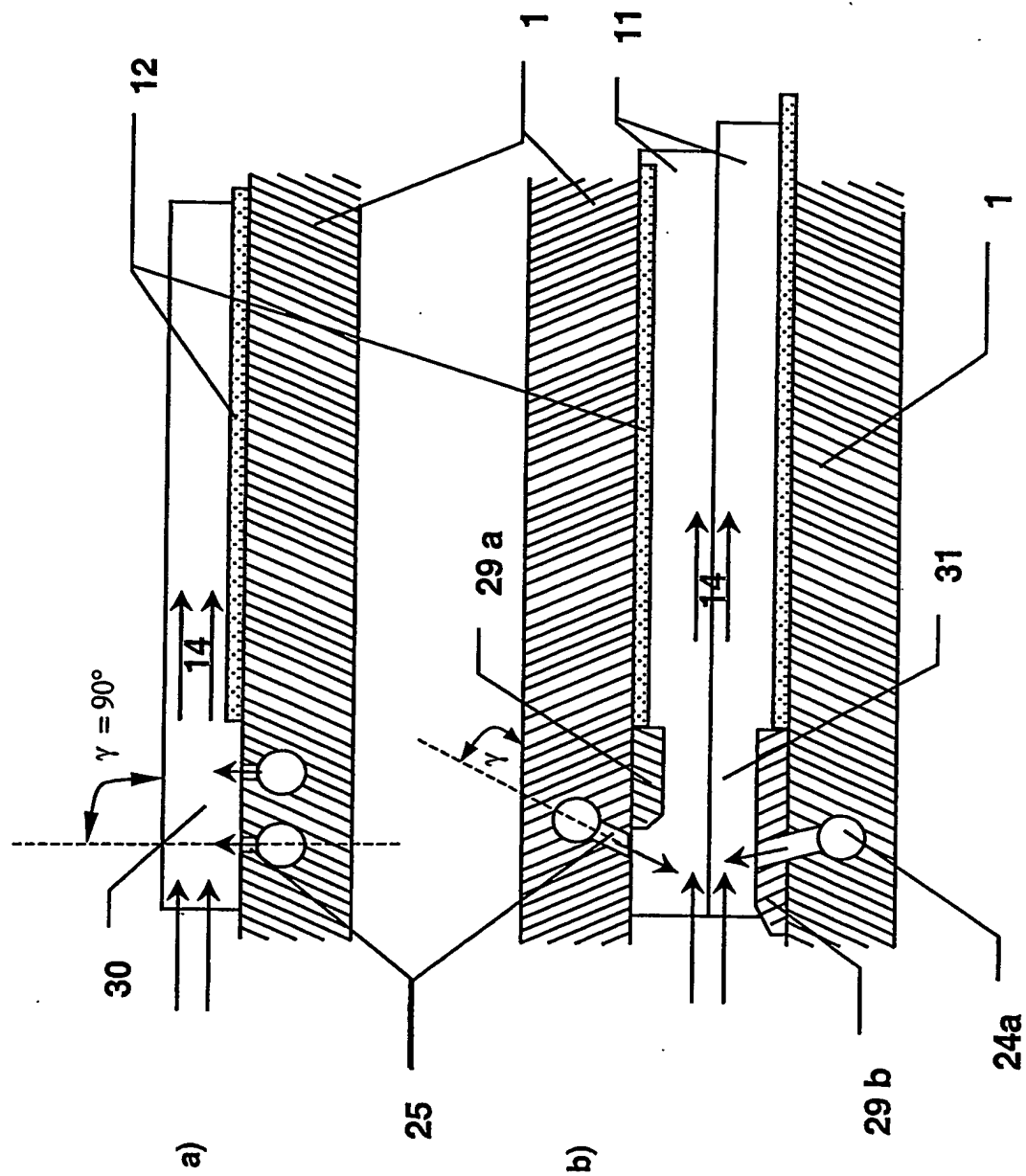


Fig. 6

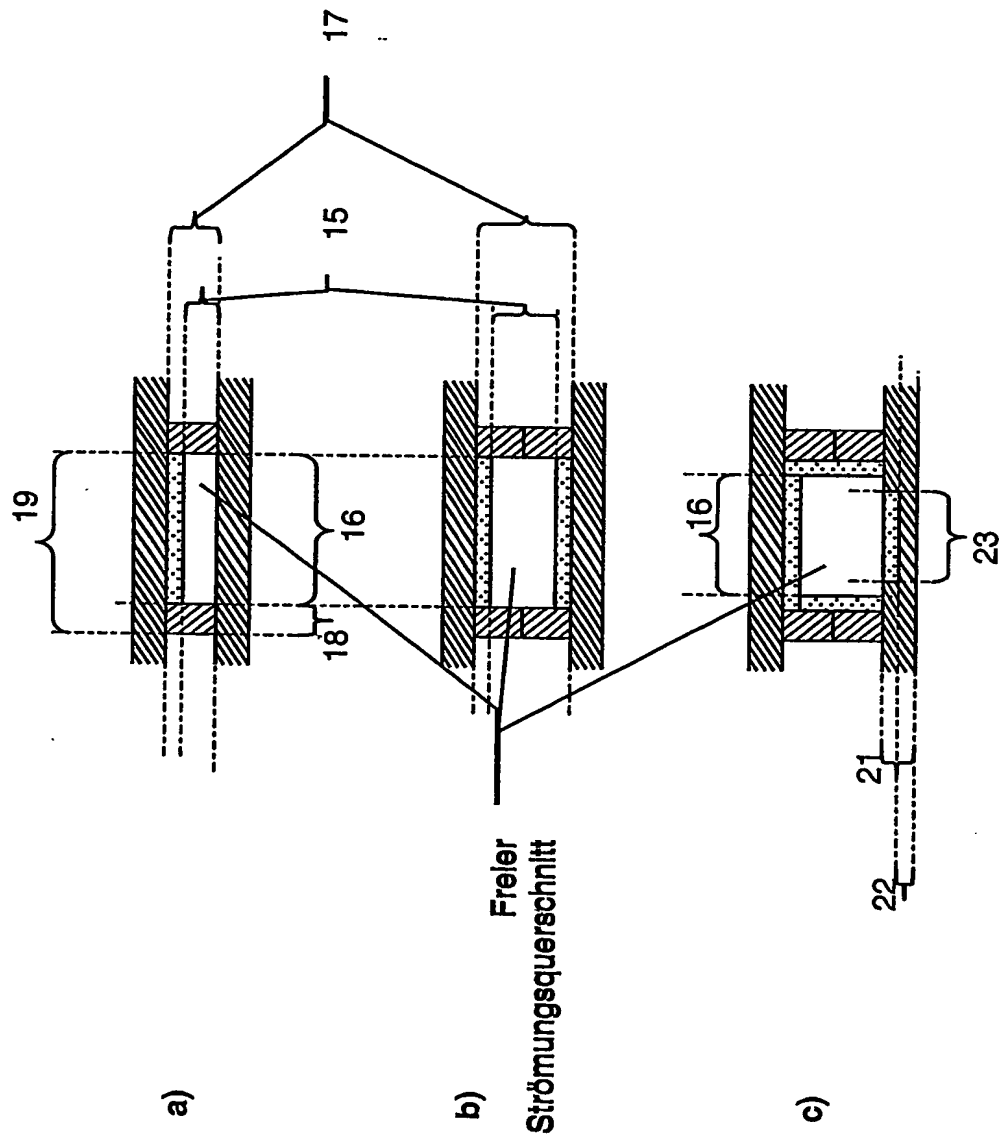


Fig. 7

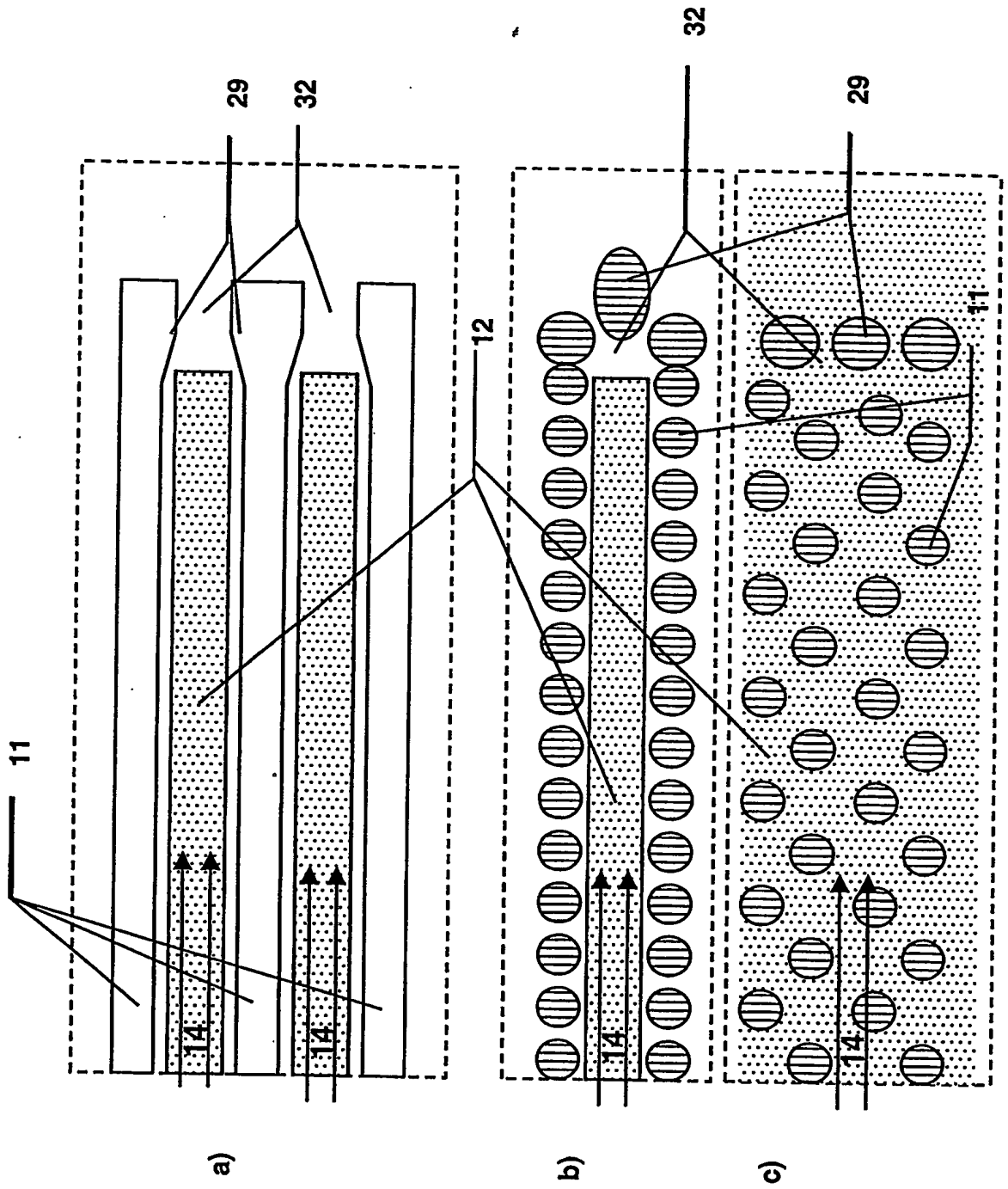


Fig. 8

